

See English Equivalent US 6,124,392

PROCESS FOR THE CONTINUOUS PRODUCTION OF HTV SILICONE COMPOUNDS

Publication number: JP6503048 (T)

Publication date: 1994-04-07

Inventor(s): HAISURAA MANFUREETO, ; SHUTARII FURIIDORIN, ;
RATOKA RUUDORUFU, ; SHURIIFU AROISU

Applicant(s): WACKER CHEMIE GMBH

Classification:






- International: B29B7/42; C08J3/20; C08K3/36; C08L83/04; B29K83/00;
B29B7/34; C08J3/20; C08K3/00; C08L83/00; (IPC1-
7): B29B7/42; B29K83/00; C08K3/36; C08L83/04

- European: C08J3/20

Application number: JP19920502487T 19920116

Priority number(s): DE19914103602 19910207; WO1992EP00080 19920116

Also published as:

 JP2531912 (B2)
 WO9213694 (A1)
 US6124392 (A)
 RU2091222 (C1)
 KR970000921 (B1)

more >>

Abstract not available for JP 6503048 (T)

Data supplied from the *espacenet* database — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表平6-503048

第2部第4区分

(43) 公表日 平成6年(1994)4月7日

(51) Int. Cl. ⁵	識別記号	序内整理番号	F I
B 2 9 B 7/43		8350-4F	
C 0 8 K 3/36			
C 0 8 L 83/04	L R X	8319-4J	
B 2 9 K 83:00			

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平4-502487
 (86) (22) 出願日 平成4年(1992)1月16日
 (85) 翻訳文提出日 平成5年(1993)8月6日
 (86) 国際出願番号 PCT/EP92/00080
 (87) 国際公開番号 WO92/13694
 (87) 国際公開日 平成4年(1992)8月20日
 (31) 優先権主張番号 P 4 1 0 3 6 0 2、6
 (32) 優先日 1991年2月7日
 (33) 優先権主張国 ドイツ (DE)
 (81) 指定国 EP (AT, BE, CH, DE, DK, ES, FR, GB, GR, IT, LU, MC, NL, SE), JP, KR, RU, US

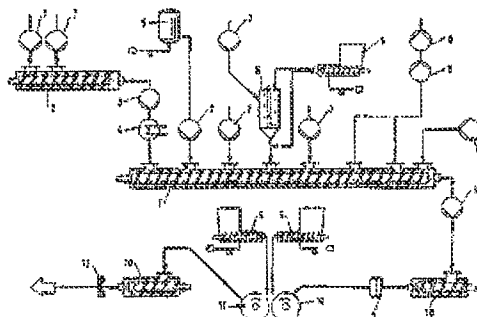
(71) 出願人 ワツカー・ケミー ゲゼルシャフト ミツト ベシユレンクテル ハフツング
 ドイツ連邦共和国 D-8000 ミュンヘン 83 ハンズ-ザイデル-プラッツ 4
 (72) 発明者 ハイスラー, マンフレート
 ドイツ連邦共和国 D-8261 エマーティンク ミュールバッハシュトラッセ 52
 (73) 発明者 シュタリー, フリードリン
 ドイツ連邦共和国 D-8263 ブルクハフゼン マルクトラー シュトラッセ 24
 (74) 代理人 弁理士 矢野 敏雄 (外2名)

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 H T V シリコン材料の連続的製造法

(57) 【要約】

本発明は H T V シリコン材料を連続的に製造する方法に関し、この方法は振動型の一軸バックステップ混練機中で、25℃で50～100000Pasの粘度を有するジオルガノ（ポリ）シロキサン100重量部を、0.01kg/lを上回る突き固め密度を有する微粒状二酸化塩素少なくとも20重量部と混合し、かつ均一化することによって特徴付けられる。



特 許 の 範 囲

1. 高圧シリコーン材料の連続的製造法において、
押出機の一軸バックステップ流線機中で、25℃で
50～100gのシリコーン樹脂の粘度を有するジアルガ
ノ（ポリ）シロキサン100重量部を、0.01と
5/1を上回る密度の樹脂を有する炭酸塩二酸化
鉛系少なくとも20重量部と混合し、かつ均一化す
ることと特徴とする、高圧シリコーン材料の連続
的製造法。
2. 得られた、混練していない高圧シリコーン材料
が15～180mmの厚さのシート状を有す
る、請求の範囲1記載の方法。
3. 500～5000gのシリコーン樹脂の粘度を有するジアル
ガノ（ポリ）シロキサンを使用する、請求の範囲1
または2記載の方法。
4. 炭酸塩二酸化鉛系としては炭酸鉛および/または
炭酸鉛による二酸化鉛が使用される、請求の範
囲1から3までのいずれか1項記載の方法。
5. 高圧シリコーン材料が次の組成：
ジアルガノ（ポリ）シロキサン 100重量部
0.01と5/1を上回る密度の樹脂を有する
炭酸塩二酸化鉛系 20～200重量部
他の添加剤 0～100重量部
炭酸鉛系 0～30重量部

材料の連続的製造法。

特 許 平 6-503016 (2)

炭酸鉛 0～70重量部

他の添加剤 0～30重量部

を有する、請求の範囲1から4までのいずれか1項
記載の方法。

6. 一軸バックステップ流線機が10～100D（D＝
スクリーンの直径）の直径を有する、請求の範囲1か
ら5までのいずれか1項記載の方法。
7. ジアルガノ（ポリ）シロキサンが一軸バックス
テップ流線機の0～40の範囲内で配量され、炭酸塩
二酸化鉛が0.5～100の範囲内で配量される、
請求の範囲1から5までのいずれか1項記載の方法。
8. 一軸バックステップ流線機内の温度が20～25
℃である、請求の範囲1から5までのいずれか1
項記載の方法。
9. 一軸バックステップ流線機を有する装置で、圧力形
成後、連続的にローラー装置の炭酸鉛系を有する、1
00℃未満の温度に冷却するため導入し、この装置
上で、場合によっては炭酸鉛および/または炭酸鉛
および/または炭酸鉛も導入可能である、請求の範囲
1から5までのいずれか1項記載の方法。
10. 炭酸鉛系を有する材料を、連続的にローラー装
置の炭酸鉛系によって圧力形成を行なう後、1
00℃未満の温度に冷却するための導入し、この装置
上で場合によっては炭酸鉛および/または炭酸鉛およ
び/または炭酸鉛も導入できる、高圧シリコーン

明 細 書

高圧シリコーン材料の連続的製造法

本発明は、専門分野で高圧シリコーン材料（High Temperature Vulcanizing）シリコーン材料として知られる、ジ
アルガノ（ポリ）シロキサンを基体とする熱硬化性シ
リコーン材料の連続的製造法に関する。この高圧シリ
コーン材料は加圧工程中の温度の点で、RTV（Ro
om Temperature Vulcanizing）シリコーン材料と区別
される。高圧シリコーン材料が、室温と比較して高
い温度で初めてラジカル反応もしくは炭酸鉛反応を起
して硬化する一方、一成分RTVシリコーン材料の基
体は炭酸鉛系成分、あるいは炭酸鉛系を有して既に
室温で硬化する。一成分高圧シリコーン材料は特
殊な添加剤を最大で10重量%の量で有する。これと比
較して、RTVシリコーン材料の場合の炭酸鉛系添加剤の
量は少なくとも20重量%である。高圧シリコー
ン材料とRTVシリコーン材料との相違は、例えば
Kinsacker, Euehler, 第6巻, Anorganische Technol
ogie II, 第4版, 1982年, カール・ハンザー社 (C
arl Hanser Verlag), ミュンヘン, ウィーン, 342～
345 頁, J. Bickert, Kautschuk, Gummi, Kunststoffe
の第5巻, Nr. 1/80 または J.C. Keil in Prepa
ration of Rubber Technology, edited by S.K. Novell.

特表平8-503048 (3)

R T V シリコーン液

一価化された材料の種類: R T V、有機塩化ゴム

R T V: パースト状

この高粘度状態は既に種々の粘度的測定の方法から認められる。例えばR T V 材料の場合、弾性ゴム組成工業で採用されているムーニー(Mooney)粘度計が使用されるが、これに対してR T V 材料の場合には回転粘度計および圧搾機が用いられる。

従って、R T V シリコーン材料は、目下の公知技術水準によればほとんど専ら不連続的に成形機、内部混合機または混合ローラー内で、混入物質を混合することによって製造される。

欧州特許第2,581,533号明細書の図面によれば、図1で開示するパーストの形の注液機を特許的に製造し、この結果、本発明に開示されるシリコーンエラストマーが得られる方法が公開であり、この場合、無数の二軸スクリュー混練機にシリコンキサン基ポリマーおよび溶媒成分が入れられる。有利に得られた成分は、1kg/lを上限する密度を有する二液系組成である。

不利なことに、この方法の場合、酸化する吸収率に依存して時間により一定でない粘度特性が起る。プラスの粘度特性を得るためには、必然的に高い純度の出発および長い停留時間をもたらし、高い混合率が必要である。更に、金属腐食による欠点は機械強度が

Elsevier Applied Science Publishers, Ltd., イギリス, 1984年 55~104頁にも示されている。

欧州特許公開第2,542,255号明細書もしくは相応する米国特許第4,377,681号明細書の記載によれば、一般にR T V シリコーン材料の連続的製造法は公知であり、この場合第一段階で製造されるポリオルガノ(ポリ)シロキサン、充填剤および任意に添加剤もしくは硬化剤および任意に一部または全部の、場合によっては使用される助剤が、連続作業する密閉混合器中で混合せられ、および前記段階では流動型パックスチップ混練機(Plasticizer)を有する中で、このようにして得られた材料に、第一段階では添加されなかった硬化剤および/または最終硬化剤に場合によっては使用される助剤の添加が配量され、および材料はこの混練機中で均一化され、かつ脱ガスされる。

R T V シリコーン材料は、時に次の点でR T V シリコーン材料と相違する:

一 R T V の場合、使用されるポリマーの密度時に高い粘度を示す

一 異なる製造方法: R T V: 連続化機
R T V: 真空脱気シラン

一 異なる充填剤の種類: R T V: シロキサンジオール

および製造物汚染の危険が存在する。

本発明の課題は、公知技術の不利な点を回避する、R T V シリコーン材料の連続的製造法を開示することである。

この課題はR T V シリコーン材料を連続的に製造する方法によって解決されるが、この方法は、流動性の一般パックスチップ混練機中で、25℃で50~100,000rpmの速度を有するジョルガノ(ポリ)シロキサン100重量部を、0.01kg/lを上回る粘度を有する低粘度硬化剤または硬化剤と少量とも20重量部と混合し、かつ均一化することによって特徴付けられる。

本発明による方法によれば、プラスの流動特性、例えば均一で透明な外観、良好な粘度特性、一定のムーニー粘度および一定のシロア(Shore)硬度を有するR T V シリコーン材料を得ることが可能である。

本発明による方法の場合、従来不連続的に製造された全てのR T V シリコーン材料用原料は、連続的に生産されることが出来る。この種の原料の例は、Geology and Technology of Silicones, W. Hall, アカデミック・プレス社(Academic Press, Inc.) オークランド, USA, 400~467頁に示されており、これに関連して明確に開示されている。

R T V シリコーン材料は、ジョルガノ(ポリ)シロキサンおよび無機二硫化物以外に他の有機物、無

機酸、有機物、無機物、場合によっては硬化剤、例えば無機酸、無機物および有機物を含有している。

得られる、開示していないR T V シリコーン材料は、粘度に5~130ムーニー単位(ムーニー粘度値、M1(1+4)、23℃)のムーニー粘度(DIN 53535)を有し、これから無機物を除いた後、引続く無機物によって、粘度に15~110、粘度に5~35のシロア硬度(DIN 53505)のエラストマーが得られる。

本発明によれば、25℃で50~100,000rpm、有利に500~50,000rpmの速度を有するジョルガノ(ポリ)シロキサンが使用される。

本発明により使用したジョルガノ(ポリ)シロキサン中のオルガノ基は、有利にメチル基、エチル基、フェニル基および/またはトリフルオロメチル基である。有利なトリフルオロメチル基は、3, 3, 3-トリフルオロメチル基である。ジョルガノ(ポリ)シロキサン中にメチル基および/またはトリフルオロメチル基以外にエチル基および/またはフェニル基が存在する場合には、これらの基によって有利な流動特性は、0.01~3.0モル%、特に、0.01~2.5モル%である。

有利にはトリメチル基、ジメチルエチル基、メチルジエチル基および/またはトリエチルシロキサン基を用

特表平6-503048 (5)

を有するポリジメチルシロキサンが有利である。これらはフェニル基を含有してよく、特に脂肪酸の誘導体を入れるため、フェニル基もこのポリジメチルシロキサンジオールの溶液中に存在してよく、この場合、フェニル基密度は10⁻³g/g (0.1N 5.5.3.4.1) によって測定される。コード量は有利にシロキサンジオール100gあたり1〜75g、特に100gあたり1〜70gである。

このポリジメチルシロキサンジオールの製造は一般に公知であり、例えばA. Fogerson, Silicone and Technique, ハンザー社 (Hanser Verlag), 29〜22頁に記述されている。

必要な場合には、無水および、有利に遊離化アルキルもしくは遊離化アロイルの基を含む有機溶剤も混入されてよい。遊離化アルキルの例は、遊離化ジグマス、ジ-1-ブチルペルオキシドおよび、5-ジ-1-ブチルペルオキシ-2, 5-ジメチルヘキサノールである。遊離化アロイルの例は、遊離化ベンゾイル、ビス(3, 4-ジクロロベンゾイル)ペルオキシドおよびビス(4-メチルベンゾイル)ペルオキシドである。

本発明により製造されたシリコン樹脂材料の有利な組成は次のようである：

ジオルガノ(ポリ)シロキサン 100重量部
0.1〜30g/lを上回る量を固め剤として有する溶液
に酸化還元 20〜300重量部、有利に30〜1

00重量部

他の成分 1〜100重量部、有利に0〜60重量部

触媒成分 0〜30重量部、有利に0〜20重量部

硬化剤 0〜7重量部、有利に0〜3重量部

他の成分 0〜30重量部、有利に0〜10重量部

全ての上記成分は、それぞれの成分の単一代表物質の混合液を使用することができる。例えばジオルガノ(ポリ)シロキサンの場合、多量の使用によって2成分系〜多成分系が特に有効である。この種の混合物の例は：

ポリマーまたは式(1) (但し、Rはメチル基を被せし、R'はフェニル基を被せし、

ならびにnは2000〜8000の範囲内にあり、n/mは200〜500の範囲内にある)で示されるポリマー

または式(2) (但し、Rはメチル基を被せし、R'はフェニル基を被せし、

ならびにnは200〜800の範囲内にある)で示されるポリマー

または式(3) (但し、Rはメチル基を被せし、R'はフェニル基を被せし、

ならびにnは200〜800の範囲内にある)で示されるポリマー

または式(4) (但し、Rはメチル基を被せし、R'はフェニル基を被せし、

ならびにnは200〜800の範囲内にある)で示されるポリマー

1で示されるポリマー 0〜25重量部
であり、使用した量の合計は100重量部であることを前提とする。

本発明によれば、ジオルガノ(ポリ)シロキサンおよび遊離化アルキル基および、場合によっては他の配位されるべき成分は、有利に10〜300g/l (0.5〜3.0重量部)、特に12〜250g/lの量を有する、振動型の1軸パックスラップ(Pilgerschritt)攪拌機(1)内で混合され、均一化され、場合によっては脱ガスされるが、この場合、スクリュウの回転数は有利に5〜300rpm、特に30〜300rpmである。しかしこの場合、全量が混合液として使用されてよいが、有利にはこれらは混合液および脱ガス液に分けられ、この場合、混合液および脱ガス液は例えば蒸気加熱によって分離されている。しかし、2つの物の分離は、前述2つの遊離化されたパックスラップ攪拌機によっても可能であり、この場合には第1の攪拌機内では混合工程が行われ、および第2の攪拌機内では脱ガス工程が行われる。

この種のパックスラップ攪拌機は専門分野ではK.O. 攪拌機(Dizionario Enciclopedico der technischen Chemie, 第4版, 第2巻, 294頁, シュライヒャー社 (Verlag Chemie), フライムハイム/ベルリン)またはK.O. 攪拌機(Encyclopedia der technischen Chemie, 第4版, 第2巻, 294頁, シュライヒャー社 (Verlag Chemie), フライムハイム/ベルリン)として、またはバス攪拌機(Buss-Schneider)としても公知である。これらのパックスラ

ップ攪拌機内では、混合される物質は全混合工程の間、加熱または冷却によって前記の温度水準に維持されることが出来る。

本発明により使用されるジオルガノ(ポリ)シロキサンは、あるいは、別途混合された遊離化混合液(2)、有利に同様にパックスラップ攪拌機から取り出され、かつさらに中間貯蔵せずに一軸パックスラップ攪拌機の混合部に入力するか(但しこの場合、混合部は混合液の成分の供給量を監視する装置として公知であり、かつ装置に調節を可とする)、または例えば中間貯蔵のような冷却装置、および混合液攪拌機、例えば攪拌機攪拌機から、有利に一軸パックスラップ攪拌機(3)のりへ移し、特に0〜200g/lの範囲の混合液内にポンプ導入される。混合液攪拌機からのジオルガノ(ポリ)シロキサンの導入は、有利に遊離化液、例えばスクリュウおよび/または攪拌機(3)を用いて行われ、この場合ジオルガノ(ポリ)シロキサンは一軸パックスラップ攪拌機内への導入前に有利に混合液攪拌機(4)、例えば攪拌機攪拌機を用いて供給される。この場合、圧力損失を回避するため、攪拌機攪拌機からの混合液はできるだけ速くであるべきであり、有利に10m以下である。

必要な場合には、1つまたは複数のジオルガノ(ポリ)シロキサンは遊離化混合液および/または、前記のように、一軸パックスラップ攪拌機の混合液

特許第6-503042(8)

の移動機構から規則正しい周期的に一定な流量配中に導入されることが出来る。

本発明により使用される二酸化炭素ならびに重合によって得られる塊状または非連続塊状物は、有利に蒸発器計量装置(6)および/または流入補助装置を備えた一般のバックスタップ流線機の場合、有利に、5〜100、特に10〜50の範囲内で入れられる。特に有利な実施態様の場合には、これは、この範囲を越えずともなるつに分断した供給源所を介して行なわれる。導入補助装置としては、適み込んだ細粒スクリューまたはスクリーンを有する円柱状または円錐形容器が最も好ましい。もしくはそれとに等価で、一側または多数の同方向または逆方向に回転する導入スクリーンが採用される。

構造改善例を用いた、流線機で親水性の二酸化炭素のメレから得られる二酸化炭素が使用される場合には、このメレ流線機または非連続的流線機(6)の内で行なわれる。

流方に固着に、一般バックスタップ流線機を密閉への密閉装置の導入が必要とされることもある。これは流線機および密閉装置を通過した供給パイプ(7)、例えばピストン・ポンプ、膜ポンプまたは隔膜ポンプを介して行なわれる。有利に、構造改善例の配管はポリマー供給源所の周囲、有利に図中5〜6の範囲で行なわれるべきであり、特に本発明により使用される

れる二酸化炭素および重合によって得られる塊状物の配管に行なわれるべきである。

もう一つの、場合により使用される装置は、流線機の直前、有利に流線機の前1組バックスタップ流線機の5〜10の範囲内の混合室もしくは脱ガス室内への構造改善例の全部または一部の供給である。

流方に固着に、他の流線機が配管されてよい。この場合、供給場所および流量重量が大きく、流方向の平均の供給に依存する。

流方に固着に配管した成分は混合室および脱ガス室で混合され、均一化され、かつ脱ガスされる。この場合、温度制御はそれぞれの流方に依存する。これは、混合室および脱ガス室が分離した温度調節装置を備える場合、有利である。一般バックスタップ流線機内の温度は、有利に50〜250℃、特に80〜220℃である。

脱ガスは有利に真空中で行なわれる。例えば、有利に真空ポンプ(8)、例えば液体水ポンプを用いて、場合によっては補助型ピストン・ポンプまたは膜ポンプと組合せて行なわれる。混合室および/または脱ガス室内の流線機が不活性ガス循環を用いた作業も同様に可能である。この場合有利に、装置が不活性ガスとして使用される。

混合および脱ガス後、物質は密閉容器に貯蔵される。流線機としては、有利に流線スクリーンを用

は流線ポンプが採用される。

有利には、次に図示した部分け装置、例えば自動流線機を流線した部分けヘッド部(9)に接続される。このために必要な圧力形成は、有利に押出し機(10)またはポンプを用いて行なわれる。

これから生じる物質は、有利に100℃以下、特に50〜100℃の温度に冷却するため、有利に連続的ローラー装置(11)、例えば乾燥ローラー装置に供給される。

流方に固着に必要な場合には、これらのローラー装置上で、市販に乾燥機および/または蒸発器および/または他の乾燥機が導入される。これらの物質の乾燥は、有利に蒸発器計量装置を介して行なわれる。

有利に50〜90℃に冷却された物質は、最後に、有利に圧力形成装置、例えば一般射出機を経て、引張る供給部(12)を経て、既知用供給品に移行されることが出来る。

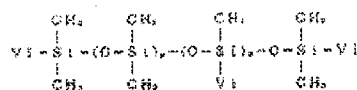
図示には省略されているが、本発明による方法の場合に使用される装置は、既に周知の構成要素、例えば供給装置および他の連続装置、例えば圧力、温度および流量等のための計量装置および調節装置、并、一般に脱ガスおよび冷却に必要な材料、連続装置および供給装置、不活性ガスを有する物質の強力供給装置、ならびにこのようなガスの乾燥装置を内蔵してよい。

本発明による方法の実施態様が図中に略図で示されているが、この場合示された装置部分は、使用されるべき装置の全概略を現わしている。流方に固着に必要な配管に依りて、もちろん場合によって必要な部分物は省略されてよく、もしくは材料は同様に作用する装置によって代替されてよい。

図は次のものを示す：

1. 一般バックスタップ流線機
2. ポリマー供給源
3. 乾燥スクリーン/流線ポンプ
4. ポリマー冷却器
5. 示量計量装置
6. 真空混合室
7. 供給ポンプ
8. 混合ポンプ
9. 部分けヘッド部
10. 押出し機
11. ローラー装置
12. 供給部

流動性一般バックスタップ流線機(1R 140型、乾燥機(150℃)に、膜ポンプおよび高圧度流線機に連通した蒸発器計量装置を介してジメチルジポリシロキサンを入れた。ポリマーは次の式によって特徴付けられる：



$$\text{VI} = \text{C}_2\text{H}_5$$

$$n + m = 6000$$

$$n / m = 3000$$

$$\text{粘度: } 20000 \text{ Pa} \cdot \text{s} \text{ (25℃)}$$

試薬を150℃に加熱溶解し、スクリーンを反応槽を100℃に調整した。貯りのポリマーのみの予備混合槽の後に更に200の反応槽を交互に供材が混合槽を介して、前段の反応槽を脱色した。全供給量: 30 kg/h。反応の終り時の温度は、30 kg/hである。供給した反応を150℃を経てポリマーと一緒に均一化し、引抜きポンプを経て反応した。物質温度は、バックステップ反応槽は実験中(所要時間: 3時間)150℃であり、150℃の範囲で保たれなければならない。生成物の性質によって調整される。

外 観	1時間後 2時間後 3時間後 の 試 験 体		
	色/透明度	色/透明度	色/透明度
色/透明度	30	30	30
色/透明度	40	40	40

外 観	1時間後 2時間後 3時間後 の 試 験 体		
	色/透明度	色/透明度	色/透明度
色/透明度	30	40	30
色/透明度	40	50	40

* 150℃ (15分) で加熱し、引抜きポンプで4時間) で反応槽へ。供給槽: 過酸化ベンゾイル

総合判定:

二種類の反応する反応槽の温度により、反応により一定でない生成物の性質が生じた。その上に、反応槽は明らかに高い反応時間を必要としている。生成物の性質は、明らかに、更にスクリーンウェブおよびポンプを調整することにより、反応槽の温度から生じる。

特許平6-503048 (7)

* 150℃ (15分) で加熱し、引抜きポンプで4時間) で反応槽へ。供給槽: 過酸化ベンゾイル

総合判定: プラスの生成物の性質および反応槽の温度。

比較例

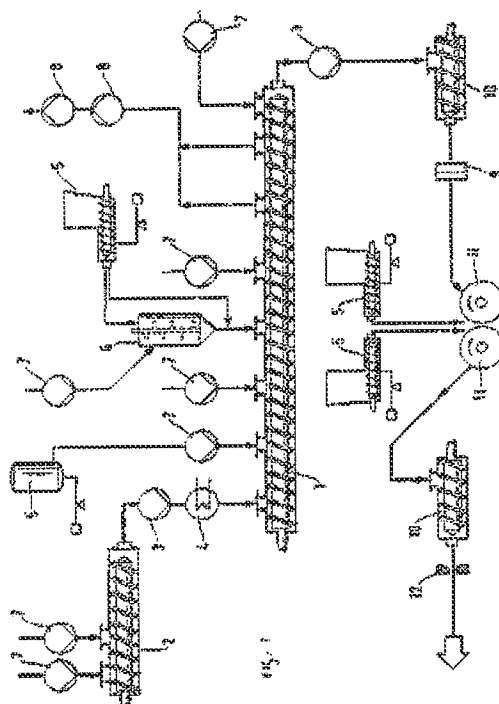
例と同様に比較実験を二層スクリーンウェブでスクリーンウェブ (Kesterweb) 型、5000) 上で進めた。投入物質および反応槽は前記の例からのものである。供給槽および反応槽の温度の両方ともは同一であった。ポリマーのみの予備混合槽は50℃であり、反応を引抜きポンプの反応槽を経て反応槽に導入した。更に150℃をポリマー中の反応槽の温度に調整した。

スクリーンウェブ: 5000型、反応槽: 200。

ポンプおよびスクリーンの反応槽: 150℃

温度: 40℃

物質温度は実験中(所要時間: 3時間) 150℃〜154℃、色/透明度で210℃までであった。生成物は次の性質によって調整される。



特表平日-503048 (8)

● 考 核 要 點 (自 考)

辛卯年 庚辰 65

陳永發

1. 事件の表示

PCT/EP 92/03080

2. 实验内容

H Y V シリコン材料の電熱的製造法

3. 数据字典

東京との國策 海峽出版人

名 稱　ワッシャー　ゲージ　グザルシヤボト　ミツ
ト　ベシムリンク　ボル　ハブツンダ

4. 代理人

住所 千代田 東京都千代田区九段南3丁目3番1号

REF ID: A632167 5081-68

成 品 (611) 非 烟 土 灰 漿 樣

3. 補正命令の日付






8. 補正により増加する請求項の数 0

7. 糖蜜の処理

讀史公範圍

8. 證証の内容

廻りの廻り

し、この装置上で場合によっては無機剤および／または有機剤および／または添加剤も投入できる、繰返す1段階の方法。

33 卷 總 錄 全 部

Manuscript Accepted Date: 7/27/2015 92/00400

[illegible]

◆ ◆ ◆ ◆ ◆

٤٢ ٥٢٢٢٢٨٩
 ٥٤ ٥٥٣٣٣

This letter and the enclosed documents relate to the 1984 telephone call to the Representative concerning the report that the Senate was in contact with the Japanese Prime Minister on 2/14/84.

The Congress Freedom Office is in this office by your request and we are glad to give the press the information.

Phone Number used in records report	Publication date	Phone Number reported	Publication date
US-A- 4208445	18-02-79	JP-A- 83280566	16-06-78
		JP-A- 84043630	18-12-79
US-A- 3572847	10-03-73	JP-A- 7825254	08-08-69
		JP-A- 1568419	05-13-68
		JP-A- 80095027	07-11-69
		JP-A- 1282122	26-02-71
US-A- 3469923	09-12-73	GB-A- 744879	26-02-70
		GB-A- 848842	26-02-76
		GB-A- 867723	31-05-71
		JP-A- 2494600	18-10-70
		JP-A- 2028213	06-01-73
		JP-A- 1591432	02-03-72
		JP-A- 7504654	06-10-78
		JP-A- 8021290	15-10-79
JP-A- 8288199	02-03-08	JP-A- 2622713	28-02-68
JP-A- 504444	25-06-73	None	

CONCLUSIONS

[illegible]

フロントページの続き

(72) 読者 ラトカ、 ルードルフ
ドイツ連邦共和国 D-8263 ブルクハウ
ゼン プラームスーシュトラーゼ 27ア

(72) 発明者 シュリーフ、 アロイス
ドイツ連邦共和国 D-8263 ブルクハウ
ゼン マリーー・エーベルト・シュトラーセ
5